

INTERMEDIATE FILM FOR LAMINATED GLASS AND LAMINATED GLASS

Patent Number: ☐ [EP1036775](#), [A4](#), [B1](#)
Publication date: 2000-09-20
Inventor(s): MIYAI JIRO (JP); SHOHI HAJIME (JP); HATTORI TSUYOSHI (JP)
Applicant(s): SEKISUI CHEMICAL CO LTD (JP)
Requested Patent: ☐ [WO0018698](#)
Application Number: EP19990969707 19990930
Priority Number(s): WO1999JP05383 19990930; JP19980277447 19980930; JP19990040047 19990218
IPC Classification: C03C27/12; C08L29/14
EC Classification: [B32B17/10G28](#)
Equivalents: [AU5999999](#), ☐ [AU744658](#), [BR9907136](#), [CA2312914](#), [DE69906926D](#), [TW469263](#),
☐ [US6383647](#)
Cited Documents: [EP1022261](#); [EP0457190](#); [WO9628504](#); [JP55037420](#)

Abstract

This invention has its object to provide an interlayer film for laminated glass an interlayer film for laminated glass which, when assembled into laminated glass, offers good transparency, weathering resistance, adhesion, penetration resistance and other characteristics, does not cause marginal whitening of laminated glass even exposed to a highly humid atmosphere, and free from the risk for a fire hazard in autoclaving or the problem associated with edge trimming and a laminate glass comprising said interlayer film. This invention is related to an interlayer film for laminated glass comprising a plasticized poly(vinyl acetal) resin film, wherein, when a laminated glass fabricated by interposing said interlayer film between a pair of glass sheets each 2.0 to 4.0 mm thick is allowed to sit in an environment of 80 DEG C and 95% relative humidity for 2 weeks, the distance of whitening from its edge is not greater than 7 mm, and when said interlayer film for laminated glass is allowed to sit at 150 DEG C for 1 hour, its weight loss is not greater than 3 weight %.

Data supplied from the [esp@cenet](#) database - I2

PCT

世界知的所有権機関
国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類7 C03C 27/12, C08L 29/14	A1	(11) 国際公開番号 WO00/18698 (43) 国際公開日 2000年4月6日(06.04.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/05383 (22) 国際出願日 1999年9月30日(30.09.99) (30) 優先権データ 特願平10/277447 1998年9月30日(30.09.98) JP 特願平11/40047 1999年2月18日(18.02.99) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.)(JP/JP) 〒530-8565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka, (JP) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 松原 初(SHOHI, Hajime)(JP/JP) 〒520-2101 滋賀県大津市青山6丁目2番9号 Shiga, (JP) 服部強司(HATTORI, Tsuyoshi)(JP/JP) 〒519-1413 三重県阿山郡伊賀町愛田285-1 Mie, (JP) 宮井二郎(MIYAI, Jiro)(JP/JP) 〒520-3107 滋賀県甲賀郡石部町石部東1丁目1-40-402 Shiga, (JP)		(74) 代理人 安富康男(YASUTOMI, Yasuo) 〒532-0011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目14番22号 リクルート新大阪ビル4F Osaka, (JP) (81) 指定国 AU, BR, CA, JP, KR, MX, SG, US, ZA, 欧州特 許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE) 添付公開書類 国際調査報告書 請求の範囲の補正の期限前の公開; 補正審受領の際には再公 開される。
(54)Title: INTERMEDIATE FILM FOR LAMINATED GLASS AND LAMINATED GLASS (54)発明の名称 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス (57) Abstract An intermediate film for a laminated glass comprising a plasticized poly(vinyl acetal) resin film, which exhibits a whitening length from an edge of 7 mm or less wherein the whitening length is measured after allowing a laminated glass, which has been manufactured by sandwiching the above intermediate film between two sheets of glass having a thickness of 2.0 to 4.0 mm, to stand for two weeks under an environment of 80 °C and a relative humidity of 95 %, and exhibits a weight decrease during being left to stand at 150 °C for one hour of 3 wt% or less; and a laminated glass using the same. This laminated glass not only is excellent in characteristics such as transparency, weather resistance, adhesiveness and resistance to cutting through, but also exhibits reduced whitening of a marginal part thereof even when it is left in an atmosphere of a high humidity, and further is free from problems relating to firing during autoclaving and to edge cut for trimming.		

(57)要約

本発明の目的は、合わせガラスとした際に、透明性、耐候性、接着性、耐貫通性等の優れた特性を有し、かつ、湿度の高い雰囲気下に置かれた場合でも合わせガラス周縁部に白化を起こすことが少なく、オートクレーブ時の火災や端部カット（トリムカット）性の問題が解決された合わせガラス用中間膜及びそれを用いた合わせガラスを提供することである。

本発明は、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜からなる合わせガラス用中間膜であって、上記合わせガラス用中間膜を厚さ 2.0～4.0 mm の 2 枚のガラスで挟み込んで合わせガラスを作製した後、上記合わせガラスを 80℃、相対湿度 95% の環境下に 2 週間放置した際の端辺からの白化距離が 7 mm 以下であり、上記合わせガラス用中間膜を 150℃ で 1 時間放置した際の重量減少が 3 重量% 以下である合わせガラス用中間膜である。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	EE	エストニア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリランカ	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SI	スロベニア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LS	レソト	SK	スロヴァキア
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BB	バルバドス	GDE	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BE	ベルギー	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MA	モロッコ	TD	チャド
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BJ	ベナン	GN	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BR	ブラジル	GW	ギニア・ビサウ	MG	マダガスカル	TZ	タンザニア
BY	ベラルーシ	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM	トルクメニスタン
CA	カナダ	HR	クロアチア		共和国	TR	トルコ
CC	中央アフリカ	HU	ハンガリー	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CF	コンゴ	ID	インドネシア	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CH	スイス	IE	アイルランド	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CI	コートジボワール	IL	イスラエル	MW	マラウイ	US	米国
CM	カメルーン	IN	インド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	VN	ヴェトナム
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZA	南アフリカ共和国
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
DE	チェッコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DK	デンマーク	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
		KR	韓国	RO	ルーマニア		

明 細 書

合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

技術分野

本発明は、耐湿性に優れ、可塑剤の揮発の少ない合わせガラス用中間膜及び該合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスに関する。

背景技術

少なくとも二枚のガラス板の間に可塑化ポリビニルアセタール樹脂からなる中間膜が挟着されてなる合わせガラスは、透明性や耐候性が良好で、しかも耐貫通性に優れ、ガラスの破片が飛散し難い等の合わせガラスに必要な基本性能を有しており、例えば、自動車や建築物の合わせガラス用として広く使用されている。

この種の合わせガラスは、上記の基本性能が良好で安全性に優れているものの、耐湿性に劣り、しかも、可塑剤の飛散が多いという問題を有する。

耐湿性については、具体的には、上記合わせガラスを湿度の高い雰囲気中に置いた場合、合わせガラスの周縁では中間膜が直接周囲の空気と接触しているため、周縁部の中間膜が白化してしまうという問題が起こる。

このような湿度の高い雰囲気中に置かれた場合でも、合わせガラスの周縁部の白化を低減しようとする試みとして、特開平 7-41340 号公報には、「ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤、カルボン酸金属塩及び直鎖脂肪酸を含有する樹脂組成物からなる合わせガラス用中間膜」が開示されている。

しかしながら、上記合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスでは、耐湿試験後の周縁部の白化は低減されているものの、依然充分ではない。また、金属塩の添加量を低減すると、上記白化の問題は改善されるが耐貫通性が低下する。

また、近年の合わせガラス用中間膜の自動車サイドガラスへの展開、フロントガラスのオープンエッジ化等に伴い、合わせガラスの耐湿性に対する要求品質がますます高まっている。

更に、合わせガラス用中間膜用可塑剤としては、一般にアジピン酸ジヘキシル、

トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート等が用いられているが、これらの可塑剤は沸点が低いために飛散し易く、中間膜の製造工程において、オートクレープ時の火災や、オートクレープ後の端部カット（トリムカット）が難しい等の問題を有するため、より高沸点の可塑剤への変更が期待されている。

発明の要約

本発明は、上記に鑑み、合わせガラスとした際に、透明性、耐候性、接着性、耐貫通性等の優れた特性を有し、かつ、湿度の高い雰囲気下に置かれた場合でも合わせガラス周縁部に白化を起こすことが少なく、オートクレープ時の火災や端部カット（トリムカット）性の問題が解決された合わせガラス用中間膜及びそれを用いた合わせガラスを提供することを目的とするものである。

本発明は、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜からなる合わせガラス用中間膜であって、上記合わせガラス用中間膜を厚さ2.0～4.0mmの2枚のガラスで挟み込んで合わせガラスを作製した後、上記合わせガラスを80℃、相対湿度95%の環境下に2週間放置した際の端辺からの白化距離が7mm以下であり、上記合わせガラス用中間膜を150℃で1時間放置した際の重量減少が3重量%以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜である。

発明の詳細な開示

以下に本発明を詳述する。

本発明の合わせガラス用中間膜は、合わせガラスを80℃、相対湿度95%の環境下に2週間放置した際の端辺からの白化距離が7mm以下であるが、7mmを超えると、白化がさらに進行しやすく、耐湿性に劣るため上記範囲に限定される。なお、上記端辺とは、合わせガラスにおける外周四辺のうち、白化部分に最も近い辺を意味する。

上記合わせガラス用中間膜を150℃で1時間放置した際の重量減少が3重量%以下であるが、3重量%を超えると、オートクレープ時に火災が起こる可能性が高くなり、オートクレープ後の端部のカットも難しくなるため上記範囲に限定される。

本発明の合わせガラス用中間膜は、可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜からなるものであれば特に限定されないが、上記合わせガラスの耐貫通性を向上させるために、用いられる金属塩を多量に添加すると、耐湿性が著しく低下する。そこで炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩及び炭素数2～10のカルボン酸のカリウム塩からなる群より選択される少なくとも2種の塩を併用すること等により、少量で耐貫通性を確保できると同時に耐湿性を改善することができる。

また、上記合わせガラス用中間膜は、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、オリゴエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート等を用いることにより、オートクレーブ火災やトリムカット性の問題を著しく改善することができる。従って、本発明の合わせガラス用中間膜は、平均アセタール化度が66～72モル%のポリビニルアセタール100重量部とトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、オリゴエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート及びテトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエートからなる群より選択される少なくとも1種の可塑剤30～50重量部とからなる可塑化ポリビニルアセタール樹脂中に、炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩及び炭素数2～10のカルボン酸のカリウム塩からなる群より選択される少なくとも2種の塩が合計5ppm以上含有されてなる可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜が好ましい。塩の含有量が5ppm未満であると接着力調整効果が低くなることがあり、塩の含有量が高すぎると耐湿性が低下することがある。

上記ポリビニルアセタールは、ポリビニルアルコールをアセタール化することにより得られるものであり、なかでも、ポリビニルアルコールをブチラール化することにより得られるポリビニルブチラールが好ましい。

ポリビニルアルコールをアセタール化して、ポリビニルアセタールを得る方法としては、例えば、ポリビニルアルコールを温水に溶解し、得られた水溶液を所定の温度、例えば、0～95℃に保持しておいて、所要の酸触媒及びアルデヒドを加え、攪拌しながらアセタール化反応を完結させ、その後、中和、水洗及び乾燥を行ってポリビニルアセタール樹脂の粉末を得る方法等が挙げられる。

上記ポリビニルアルコールとしては、平均重合度500～5000のものが好ま

しく、平均重合度 1000～2500 のものがより好ましい。平均重合度が 500 未満であると、合わせガラス用中間膜を用いて合わせガラスを作製した際に、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、平均重合度が 5000 を超えると、合わせガラス用中間膜の成形がしにくくなり、しかも合わせガラス用中間膜の強度が強くなり過ぎる場合がある。

上記ポリビニルアセタールは、ビニルアセタール成分とビニルアルコール成分とビニルアセテート成分とから構成されている。これらの各成分量は、例えば、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」や赤外吸収スペクトル (IR) に基づいて測定することができる。

上記ポリビニルアセタールが、ポリビニルブチラール以外の場合は、ビニルアルコール成分量とビニルアセテート成分量とを測定し、残りのビニルアセタール成分量は、100 から上記両成分量を差し引くことにより算出することができる。

上記ポリビニルアセタール中におけるビニルアセテート成分は、30 モル%以下に設定するのが好ましく、そのためには、ポリビニルアルコールとして鹼化度 70 モル%以上のものが好適に用いられる。ポリビニルアルコールの鹼化度が 70 モル%未満であると、得られるポリビニルアセタールの透明性や耐熱性が低下することがあり、更に、反応性も低下することがある。

なお、ポリビニルアルコールの平均重合度及び鹼化度は、例えば、JIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。こうして得られるポリビニルアセタールの平均アセタール化度は、66～72 モル%が好ましい。平均アセタール化度が 66 モル%未満では可塑剤との相溶性が低下することがあり、72 モル%を超えると得られる合わせガラスの耐貫通性に必要な力学物性が確保できないことがある。

上記合わせガラス用中間膜は、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、オリゴエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート及びテトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエートからなる群より選択される少なくとも一種を含む。

上記トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートは、トリエチレングリコールとその 2 倍等量以上の 2-エチルヘキシル酸とを触媒下で反応させるこ

とにより得ることができる。

上記オリゴエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートは、オリゴエチレングリコールとその2倍等量以上の2-エチルヘキシル酸とを触媒下で反応させることにより得ることができる。

上記オリゴエチレングリコールとしては、エチレングリコール単位が3~9のものを90重量%以上含有しているものが好ましく、具体的には、例えば、三井東圧化学社製、三菱化学社製、日曹ケミカル社製等の市販品が挙げられる。

上記テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエートは、テトラエチレングリコールとその2倍等量以上のn-ヘプタン酸とを触媒下で反応させることにより得ることができる。

ポリビニルアセタールに対する上記可塑剤の配合量は、ポリビニルアセタール100重量部に対し、30~50重量部が好ましい。可塑剤の配合量が30重量部未満であると、得られる合わせガラス用中間膜のトリムカット性が低下することがあり、一方、可塑剤の配合量が50重量部を超えると、上記可塑剤がブリードアウトしてガラスとの接着不良が生じることがある。

上記合わせガラス用中間膜は、上記可塑剤のほかに、炭素数2~10のカルボン酸のマグネシウム塩及び炭素数2~10のカルボン酸のカリウム塩からなる群より選択される少なくとも2種を含むが、これらは、接着力調整剤として用いられるものである。

中間膜とガラスとの接着力が弱すぎると、外部からの衝撃等により破損したガラス破片が中間膜から剥がれ、飛散して人体等に障害を与える可能性が高くなり、一方、中間膜とガラスとの接着力が強すぎると、外部からの衝撃等によりガラスと中間膜とが同時に破損し、ガラスと中間膜との接着破片が飛散して人体等に障害を与えるため、接着力を適当な範囲に調整する必要があるが、これらの塩の2種が併用されることにより、少量で接着力の調整が可能となり、得られる合わせガラス用中間膜の耐湿性もより向上する。

上記炭素数2~10のカルボン酸のマグネシウム塩及び炭素数2~10のカルボン酸のカリウム塩からなる群より選ばれる2種以上の塩を組み合わせる場合、マグネシウム塩同士の組み合わせであってもよいし、カリウム塩同士の組み合わせ

であってもよいし、更に、マグネシウム塩とカリウム塩との組み合わせであってもよい。

上記合わせガラス用中間膜中の炭素数 2 ～ 10 のカルボン酸のマグネシウム塩及び炭素数 2 ～ 10 のカルボン酸のカリウム塩からなる群より選ばれる 2 種以上の塩は、合わせガラス用中間膜中に合計量で 5 ppm 以上含有されていることが好ましい。塩の含有量が 5 ppm 未満では、得られる合わせガラス用中間膜の接着力の調整がしにくくなるからである。より好ましくは、10 ～ 150 ppm である。塩の含有量が 150 ppm を超えた場合には、得られる中間膜の耐湿性が低下することがある。

本発明の合わせガラス用中間膜には、そのほか、必要に応じて、紫外線吸収剤、光安定剤、酸化防止剤、界面活性剤、着色剤等の合わせガラス用中間膜に一般的に用いられている公知の添加剤が添加されていてもよい。

上記紫外線吸収剤としては特に限定されず、例えば、ベンゾトリアゾール系のもの等が挙げられ、具体的には、チバガイギー社製の商品名「チヌビン P」、「チヌビン 320」、「チヌビン 326」、「チヌビン 328」等が挙げらる。これらの紫外線吸収剤は単独で用いられてもよいし、2 種以上が併用されてもよい。

上記光安定剤としては特に限定されず、例えば、ヒンダードアミン系のもの等が挙げられ、具体的には、旭電化工業社製の商品名「アデガスタブル A-57」等が挙げられる。これらの光安定剤は単独で用いられてもよいし、2 種以上が併用されてもよい。

上記酸化防止剤としては特に限定されず、例えば、フェノール系のもの等が挙げられ、具体的には、住友化学工業社製の商品名「スミライザー BHT」、チバガイギー社製の商品名「イルガノックス 1010」等が挙げられる。これらの酸化防止剤は単独で用いられてもよいし、2 種以上が併用されてもよい。

上記合わせガラス用中間膜を製造する方法としては特に限定されるものではないが、例えば、上述のポリビニルアセタールに、上述の可塑剤、及び、炭素数 2 ～ 10 のカルボン酸のマグネシウム塩及び炭素数 2 ～ 10 のカルボン酸のカリウム塩からなる群より選択される少なくとも 2 種の塩を添加し、更に、必要に応じて、各種添加剤を所定量配合し、これを均一に混練した後、押し出し法、カレンダー

一法、プレス法、キャスト法、インフレーション法等によりシート状に製膜して可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜を成形し、これを合わせガラス用中間膜とする方法等が挙げられる。

上記合わせガラス用中間膜は、単層で合わせガラス用中間膜としてもよいし、2枚以上が積層された状態で合わせガラス用中間膜としてもよい。

上記合わせガラス用中間膜の全体の膜厚は、特に限定されるものではないが、得られる合わせガラスに最小限必要な耐貫通性や耐侯性等を考慮すると、実的には、通常、0.3～1.6 mmが好ましい。より好ましくは、0.3～0.8 mmである。

本発明の合わせガラスは、上記合わせガラス用中間膜を2枚のガラス板で挟み込んだものである。

上記ガラス板としては特に限定されず、例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス、熱線吸収板ガラス、着色された板ガラス等の無機透明ガラス板；ポリカーボネート板、ポリメチルメタクリレート板等の有機透明ガラス板等が挙げられる。

これらの無機透明ガラス板及び有機透明ガラス板は単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。また、無機透明ガラス板と有機透明ガラス板とが積層されたものであってもよい。

上記ガラス板の厚さは、用途によって適宜選択されればよく、特に制限されるものではない。

上記合わせガラスを製造する方法としては特に限定されず、例えば、2枚の透明なガラス板の間に、上記合わせガラス用中間膜を挟み、これをゴムバックに入れ、減圧吸引しながら約70～110℃の温度で予備接着し、次いで、オートクレーブを用いて約120～150℃の温度で、約10～15 kg/cm² 圧力で本接着を行うことにより、所望の合わせガラスを得る方法等が挙げられる。

発明を実施するための最良の形態

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

実施例 1

(1) ポリビニルブチラルの合成

純水 2890 g に、平均重合度 1700、鹼化度 99.2 モル% のポリビニルアルコール 275 g を加えて加熱溶解した。反応系を 15℃ に温度調節し、35 重量% の塩酸 201 g と n-ブチルアルデヒド 157 g とを加え、この温度を保持しながら反応物を析出させた。その後、反応系を 60℃ で 3 時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応の n-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を汎用な中和剤である水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で 2 時間水洗及び乾燥することにより、白色粉末状のポリビニルブチラルを得た。このポリビニルブチラルの平均ブチラル化度は 68.5 モル% であった。

(2) 合わせガラス用中間膜の製造

上記で得られたポリビニルブチラル 100 重量部に対し、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート 39 重量部を配合し、更に、酢酸マグネシウムが 20 ppm、2-エチル酪酸マグネシウムが 40 ppm の含有量となるようにこれらを添加し、ミキシングロールで十分に熔融混練した後、プレス成形機を用いて 150℃ で 30 分間プレス成形し、平均膜厚 0.76 mm の合わせガラス用中間膜を得た。

(3) 合わせガラスの製造

上記で得られた合わせガラス用中間膜を、その両端から透明なフロートガラス（縦 30 cm × 横 30 cm × 厚さ 3 mm）で挟み込み、これをゴムバック内に入れ、20 torr の真空度で 20 分間脱気した後、脱気したままオーブンに移し、更に、90℃ で 30 分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスをオートクレーブ内で 135℃、圧力 12 kg/cm² の条件で 20 分間圧着を行い、合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを下記の評価方法で評価した。結果を表 2 に示した。

評価方法

1、パンメル値

中間膜のガラスに対する接着性はパンメル値で評価した。即ち、合わせガラスを

−18±0.6℃の温度に16時間放置した後、これを頭部が0.45kgのハンマーで叩いてガラスの粒径が6mm以下になるまで粉碎した。ガラスが部分剥離した後の膜の露出度を予めグレード付けした限度見本で判定し、その結果を下記表1に従いパンメル値として表した。なお、パンメル値が大きい程ガラスとの接着力も大きく、パンメル値が小さい程ガラスとの接着力も小さい。

表 1

膜の露出度(%)	パンメル値
100	0
90	1
85	2
60	3
40	4
20	5
10	6
5	7
2以下	8

2、耐湿性

合わせガラスを、温度80℃、相対湿度95%の環境下に2週間放置した後、取り出してすぐに端辺からの白化距離を測定した。

3、中間膜中の可塑剤の揮発性（加熱減量）

中間膜を150℃のオーブンに1時間放置し、加熱前後の中間膜の重量を測定し、得られた測定値から重量減少（重量%）を算出した。

実施例 2

接着力調整剤として、酢酸カリウム70ppm、2-エチル酪酸マグネシウム20ppmとなるように添加した以外は実施例1と同様にして合わせガラスを作製し評価した。得られた結果を表2に示した。

実施例 3

接着力調整剤として、酢酸マグネシウム 20 ppm、2-エチルヘキシル酸マグネシウム 60 ppm となるように添加した以外は実施例 1 と同様にして合わせガラスを作製し評価した。得られた結果を表 2 に示した。

実施例 4

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートに代えて、オリゴエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（平均グリコール鎖：3.8）を用いた以外は実施例 1 と同様にして合わせガラスを作製し評価した。得られた結果を表 2 に示した。

実施例 5

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートに代えて、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエートを用いた以外は実施例 1 と同様にして合わせガラスを作製し評価した。得られた結果を表 2 に示した。

実施例 6

接着力調整剤として、2-エチル酪酸マグネシウムのみを 4 ppm となるように添加した以外は実施例 1 と同様にして合わせガラスを作製し評価した。得られた結果を表 2 に示した。

比較例 1

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートに代えて、アジピン酸ジヘキシル（DHA）を用いた以外は実施例 1 と同様にして合わせガラスを作製し評価した。得られた結果を表 2 に示した。

比較例 2

接着力調整剤として、酢酸カリウムのみを 80 ppm となるように添加した以外は実施例 1 と同様にして合わせガラスを作製し評価した。得られた結果を表 2 に

示した。

表 2

	ハンメル値	白化距離 (mm)	加熱減量 (%)
実施例 1	3	2	2
実施例 2	3	2	2
実施例 3	3	2	2
実施例 4	3	5	2
実施例 5	3	5	2
実施例 6	8	2	2
比較例 1	3	2	8
比較例 2	3	15	2

産業上の利用可能性

本発明の合わせガラス用中間膜は、上述の構成からなるので、合わせガラスとした際に、透明性、耐候性、接着性、耐貫通性等の優れた特性を有し、かつ、湿度の高い雰囲気下に置かれた場合でも合わせガラス周縁部に白化を起こすことが少なく、可塑剤の揮発も抑制されるためオートクレーブ時に火災を起こしにくく、トリムカット性も良好である。

本発明の合わせガラスは、上述の構成からなるので、透明性、耐候性、接着性、耐貫通性等の合わせガラスとして必要な基本性能に優れ、かつ、湿度の高い雰囲気下に置かれた場合でも合わせガラス周縁部に白化を起こすことが少ない。

請 求 の 範 囲

1. 可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜からなる合わせガラス用中間膜であって、

前記合わせガラス用中間膜を厚さ2.0～4.0mmの2枚のガラスで挟み込んで合わせガラスを作製した後、前記合わせガラスを80℃、相対湿度95%の環境下に2週間放置した際の端辺からの白化距離が7mm以下であり、

前記合わせガラス用中間膜を150℃で1時間放置した際の重量減少が3重量%以下である

ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

2. 可塑化ポリビニルアセタール樹脂膜は、平均アセタール化度が66～72モル%のポリビニルアセタール100重量部と

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、オリゴエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート及びテトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエートからなる群より選択される少なくとも1種の可塑剤30～50重量部とからなる可塑化ポリビニルアセタール中に、

炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩及び炭素数2～10のカルボン酸のカリウム塩からなる群より選択される少なくとも2種の塩が合計5ppm以上含有されてなるものであることを特徴とする請求項1記載の合わせガラス用中間膜。

3. ポリビニルアセタールは、平均ブチラール化度が66～72モル%のポリビニルブチラールであることを特徴とする請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜。

4. 塩の含有量は、10～150ppmであることを特徴とする請求項2又は3記載の合わせガラス用中間膜。

5. 請求項 1、2、3 又は 4 記載の合わせガラス用中間膜が用いられていることを特徴とする合わせガラス。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/05383

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C03C27/12 C08L29/14

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C03C27/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1994 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 10-139497, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 26 May, 1998 (26.05.98), Claims 1, 2; Par. Nos. [0014], [0015], [0018] (Family: none)	1-5
A	JP, 10-245246, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 14 September, 1998 (14.09.98), Claims 1, 2; Par. Nos. [0014], [0015], [0023] (Family: none)	1-5

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not
"E" considered to be of particular relevance
earlier document but published on or after the international filing
date
"I" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is
cited to establish the publication date of another citation or other
special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other
means
"P" document published prior to the international filing date but later
than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or
priority date and not in conflict with the application but cited to
understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
considered novel or cannot be considered to involve an inventive
step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
considered to involve an inventive step when the document is
combined with one or more other such documents, such
combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12 January, 2000 (12.01.00)

Date of mailing of the international search report
25 January, 2000 (25.01.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 99/05383

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. cl ¹ C03C27/12 C08L29/14		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. cl ¹ C03C27/12		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1926-1996 日本国公開実用新案公報 1971-1994 日本国登録実用新案公報 1994-2000 日本国実用新案登録公報 1996-2000		
国際調査で利用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 10-139497, A (積水化学工業株式会社) 26. 05月. 1998 (26. 05. 98) 請求項1、2、段落14、15、18 (ファミリーなし)	1-5
A	JP, 10-245246, A (積水化学工業株式会社) 14. 09月. 1998 (14. 09. 98) 請求項1、2、段落14、15、23 (ファミリーなし)	1-5
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 12. 01. 00	国際調査報告の発送日 25. 01. 00	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 鈴木紀子 印	4T 2102
電話番号 03-3581-1101 内線 3463		